

BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND

EP05/370

**PRIORITY
DOCUMENT**SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

REC'D 03 FEB 2005

WIPO PCT

**Prioritätsbescheinigung über die Einreichung
einer Patentanmeldung****Aktenzeichen:**

10 2004 006 145.9

Anmeldetag:

07. Februar 2004

Anmelder/Inhaber:

Merck Patent GmbH, 64293 Darmstadt/DE

Bezeichnung:

Partikel mit funktionellem Multilayeraufbau

IPC:

B 01 J, C 08 K, C 09 D

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

München, den 26. Oktober 2004
Deutsches Patent- und Markenamt
Der Präsident
Im Auftrag

Schärer

**Merck Patent Gesellschaft
mit beschränkter Haftung
64271 Darmstadt**

Partikel mit funktionellem Multilayeraufbau

Partikel mit funktionellem Multilayeraufbau

Die vorliegende Erfindung betrifft Partikel mit funktionellem Multilayeraufbau auf der Basis von Substraten, dadurch gekennzeichnet, dass die Substrate mit einer oder mehreren Schichten aus einem oder mehreren Polymeren und einer oder mehreren Schichten aus ein oder mehreren Silanen beschichtet sind, Verfahren zu Ihrer Herstellung sowie deren Verwendung.

10 In einer Reihe von technischen Systemen und Werkstoffen werden zunehmend partikelförmige Materialien eingesetzt, die in diesen Systemen eine Vielfalt von Aufgaben übernehmen können. So werden sie beispielsweise zum Korrosionsschutz, als Barriere, zur mechanischen Verstärkung aber auch zur Farbgebung eingesetzt. Dabei werden die

15 partikelförmigen Materialien in einer Vielzahl unterschiedlicher Applikationsmedien eingesetzt, wie z.B. Lacken, Farben, Kunststoffen, wobei an die partikelförmigen Materialien ganz individuelle Anforderungen gestellt werden. Primär sollen die Materialien mit dem sie umgebenden Applikationsmedium gut verträglich sein, müssen aber auch für zum Teil

20 lange Zeiträume ausreichend stabil sein. So werden beispielsweise plättchenförmige Effektpigmente auf der Basis plättchenförmiger Substrate vielfältig zur Farbgebung angewendet, und das in einer ganzen Reihe sich stark von der Zusammensetzung unterscheidender Applikationsmedien. Ein grundsätzliches Problem ist dabei die Neigung von plättchenförmigen

25 Effektpigmenten zur Bildung von Agglomeraten, in denen die Pigmente stapelförmig aufeinander liegen und auf Grund von starker Adhäsion nur schwer wieder zu separieren sind. Dies ist umso schwerwiegender, als bei der Einarbeitung von plättchenförmigen Effektpigmenten in Anwendungsmedien wegen der leichten Zerbrechlichkeit der dünnen

30 Plättchen keine hohen Scherkräfte ausgeübt werden dürfen. Die Verträglichkeit der partikelförmigen Materialien mit den Applikationsmedien

ist dabei nicht nur bei plättchenförmigen Materialien, sondern bei jeglichen partikelförmigen Materialien problematisch.

5 Zur Umgehung dieser Probleme wurde vielfach vorgeschlagen, die partikelförmigen Materialien einer Nachbehandlung zu unterziehen, die die Anwendungseigenschaften dieser Materialien verbessern soll. Vielfach handelt es sich bei der Nachbehandlung um eine Beschichtung der partikelförmigen Materialien mit Silanen oder Polymeren. So beschreibt die WO 99/51690 Pigmente mit verbesserten Dispergiereigenschaften, wobei
10 ein Pigment, z.B. Graphit, mit Polyamiden, Polycarbonaten, Polyether etc. beschichtet wird, sowie die Verwendung dieser oberflächenmodifizierten Pigmente in Tinten, Tonern und Kunststoffen.

15 EP 0 703 192 beschreibt quervernetzte harzbeschichtete SiO_2 -Partikel umfassend 0.6 bis 17 μm große SiO_2 -Partikel, die mit einem vinylhaltigen Silan beschichtet werden, um anschließend darauf radikalisch ein Vinylmonomer zu einem Polymer zu polymerisieren. Auf diese Weise beschichtete Partikel dienen als Mittel um die Dicke einer Flüssigkristallschicht in einem LCD-Display zu kontrollieren. Die
20 Beschichtung dient also dem alleinigen Zweck eine Abstandshalterfunktion der Partikel zu gewährleisten, das heißt eine Dispergierung dieser Partikel im Flüssigkristallmedium ist auf keinen Fall erwünscht. Diese Partikel sind daher ungeeignet, um sie in Farben, Lacken oder Kunststoffen einzusetzen, da sie über keine ausreichende Dispergierbarkeit in diesen
25 Medien verfügen.

Die beschriebenen Methoden zur Oberflächenmodifizierung von Partikeln, z.B. die Fällungspolymerisation einer monomeren Verbindung in Anwesenheit der zu beschichtenden Partikel oder die Aufpolymerisation
30 eines Monomeren auf eine funktionalisierte Oberfläche, die sogenannten Grafting-From-Methoden (siehe EP 0 703 192) scheitern oftmals an einer ungenügenden Anbindung des Belegungsmaterials an einer bereits

modifizierten, z.B. silanbeschichteten Oberfläche, an der notwendigen, aufwändigen Funktionalisierung der Oberfläche oder an den speziellen Erfordernissen bei der Reaktionsführung, wie z.B. der Polymerisation unter Schutzgasatmosphäre. Ferner ist die Schichtenfolge oftmals nicht frei wählbar, das heißt die Schichtenfolge kann nicht an die Erfordernisse sondern muss an die Verfahrensparameter angepasst werden. Wesentlicher Schritt ist dabei oftmals nicht die Silanmodifizierung, sondern die Belegung der Oberfläche mit Polymeren.

Es bestand daher die Aufgabe, partikelförmige Materialien so zu modifizieren, dass sie in einer Vielzahl unterschiedlicher Medien und Applikationen dispergierbar sind, bzw. ihre Anwendungseigenschaften individuell an das Applikationsmedium angepasst werden können. Darüber hinaus sollen die modifizierten Partikel in den Applikationsmedien stabil sein und, insbesondere im Falle von Pigmenten, zu einer gleichmäßigen Einfärbung führen, ohne die wesentlichen Farbeigenschaften oder den Glanz zu verändern. Weiterhin ist eine zusätzliche Stabilisierung der partikelförmigen Materialien, insbesondere bei plättchenförmigen Materialien, erwünscht, um ihren problemlosen Einsatz auch in Anwendungen mit hoher mechanischer oder thermischer Belastung zu ermöglichen.

Es hat sich gezeigt, dass Partikel mit Multilayeraufbau gemäß der vorliegenden Erfindung dieses komplexe Anforderungsprofil erfüllen und damit den Einsatzbereich von partikelförmigen Materialien auch in mechanisch oder thermisch anspruchsvollen bzw. schwer applizierbaren Anwendungen erweitern.

Gegenstand der vorliegenden Erfindung sind demgemäß Partikel mit Multilayeraufbau auf der Basis von Substraten, wobei die Substrate mit einer oder mehreren Schichten aus einem oder mehreren Polymeren und einer oder mehreren Schichten aus ein oder mehreren Silanen beschichtet

sind. Weiterhin sind Gegenstand der vorliegenden Erfindung Verfahren zur Herstellung dieser Pigmente sowie deren Verwendung in Lacken, Wasserlacken, Pulverlacken, Farben, Druckfarben, Sicherheitselementen, Kunststoffen, Beton, in kosmetischen Formulierungen, in Agrarfolien und Zeltplanen und zur Herstellung von Pigmentpräparationen und Trockenpräparaten.

Die erfindungsgemäßen Partikel mit Multilayeraufbau haben den Vorteil, dass sie in bezug auf ihre Anwendungseigenschaften individuell an das Applikationsmedium angepasst werden können. Die Schichten aus ein oder mehreren Silanen üben eine Barrierefunktion aus, die ein oder mehreren Polymerschichten stabilisieren die Partikel gegenüber Agglomeration aber auch gegenüber mechanischen Einflüssen. Je nach Wahl der Polymere wird die Verträglichkeit der Partikel mit einer ebenfalls aus Polymeren bestehenden Matrix, z.B. mit einer Bindemittelmatrix, wesentlich verstärkt. Der Multilayeraufbau erweist sich dabei als stabil, das heißt eine Ablösung der aufgetragenen Schichten aus Silanen und Polymeren erfolgt nicht. Dabei ist es von Vorteil, dass eine chemische Anbindung der Silane an die Polymere, wie es beim Stand der Technik der Fall ist, nicht erforderlich ist, das heißt, das Silan und das Polymer müssen in bezug auf ihre Struktur und Reaktivität nicht aufeinander abgestimmt werden. Dies erweitert die Variabilität im Hinblick auf die erwünschten Eigenschaften der Partikel und erlaubt die optimale Kombination der Eigenschaften der eingesetzten Silane mit denen der eingesetzten Polymere. Werden die Polymerschichten nicht durch Aufpolymerisation gebildet, sondern, wie in der vorliegenden Erfindung, vorzugsweise durch Präzipitation von Polymeren hergestellt, so kann auch auf eine aufwendige Schutzgasatmosphäre verzichtet werden. Weiterhin werden zusätzlich die Partikel durch das Verfahren mit weniger Fremdstoffen belastet. Die erhaltenen Produkte fallen somit bei der Produktion gleich in reinerer Form an, so dass ein störender Monomergehalt, bzw. eine aufwändige Reinigung hier vermieden werden kann.

Die erfindungsgemäßen Partikel mit Multilayeraufbau basieren auf Substraten, wobei die Substrate prinzipiell jede Form haben können, vorzugsweise sind sie plättchenförmig. Insbesondere plättchenförmige Partikel werden bei Einarbeitung in Applikationen durch Scherkräfte mechanisch belastet. Durch den erfindungsgemäßen Schichtaufbau aus Silanen und Polymeren können diese Partikel zusätzlich stabilisiert werden, was ihre Anwendung in mechanisch anspruchsvollen Applikationen ermöglicht.

Als Substrate eignen sich SiO_2 -, TiO_2 -Partikel, Effektpigmente, holographische Pigmente, Perlglanzpigmente, Interferenzpigmente, Mehrschichtpigmente, Metalleffektpigmente und/oder BiOCl -Pigmente, vorzugsweise handelt es sich bei Substraten um Effektpigmente, Perlglanzpigmente, Interferenzpigmente, Mehrschichtpigmente oder Metalleffektpigmente.

Gemäß der vorliegenden Erfindung einsetzbare Effektpigmente, Perlglanzpigmente, Interferenzpigmente, Metalleffektpigmente oder Mehrschichtpigmente mit transparenten, semitransparenten und/oder opaken Schichten basieren insbesondere auf Trägern, wobei letzterer vorzugsweise plättchenförmig ist. Beispielsweise eignen sich plättchenförmiges TiO_2 , synthetischer oder natürlicher Glimmer, Glasplättchen, Metallplättchen, plättchenförmiges SiO_2 , Al_2O_3 oder plättchenförmiges Eisenoxid. Die Metallplättchen können unter anderem aus Aluminium, Titan, Bronze, Stahl oder Silber bestehen, vorzugsweise Aluminium und/oder Titan. Die Metallplättchen können dabei durch entsprechende Behandlung passiviert sein. In einer bevorzugten Ausführungsform kann der Träger mit einer oder mehreren transparenten, semitransparenten und/oder opaken Schichten enthaltend Metalloxide, Metalloxyhydrate, Metallsboxide, Metalle, Metallfluoride, Metallnitride, Metalloxy-nitride oder Mischungen dieser Materialien beschichtet sein. Die

Metalloxid-, Metalloxidhydrat-, Metallsboxid-, Metall-, Metallfluorid-, Metallnitrid-, Metalloxynitridschichten oder die Mischungen hieraus können niedrig- (Brechzahl < 1.8) oder hochbrechend (Brechzahl ≥ 1.8) sein. Als Metalloxide und Metalloxidhydrate eignen sich alle dem Fachmann bekannten Metalloxide oder Metalloxidhydrate, wie z. B. Aluminiumoxid, Aluminiumoxidhydrat, Siliziumoxid, Siliziumoxidhydrat, Eisenoxid, Zinnoxid, Ceroxid, Zinkoxid, Zirkoniumoxid, Chromoxid, Titanoxid, insbesondere Titandioxid, Titanoxidhydrat sowie Mischungen hieraus, wie z.B. Ilmenit oder Pseudobrookit. Als Metallsboxide können beispielsweise die Titansboxide eingesetzt werden. Als Metalle eignen sich z.B. Chrom, Aluminium, Nickel, Silber, Gold, Titan, Kupfer oder Legierungen, als Metallfluorid eignet sich beispielsweise Magnesiumfluorid. Als Metallnitride oder Metalloxynitride können beispielsweise die Nitride oder Oxynitride der Metalle Titan, Zirkonium und/oder Tantal eingesetzt werden. Bevorzugt werden Metalloxid-, Metall-, Metallfluorid und/oder Metalloxidhydrat-schichten und ganz besonders bevorzugt Metalloxid- und/oder Metalloxidhydratschichten auf den Träger aufgebracht. Weiterhin können auch Mehrschichtaufbauten aus hoch- und niedrigbrechenden Metalloxid-, Metalloxidhydrat-, Metall- oder Metallfluoridschichten vorliegen, wobei sich vorzugsweise hoch- und niedrigbrechende Schichten abwechseln. Insbesondere bevorzugt sind Schichtpakete aus einer hoch- und einer niedrigbrechenden Schicht, wobei auf dem Träger eine oder mehrere dieser Schichtpakete aufgebracht sein können. Die Reihenfolge der hoch- und niedrigbrechenden Schichten kann dabei an den Träger angepasst werden, um den Träger in den Mehrschichtaufbau mit einzubeziehen. In einer weiteren Ausführungsform können die Metalloxid-, Metalloxidhydrat-, Metallsboxid-, Metall-, Metallfluorid-, Metallnitrid-, Metalloxynitridschichten mit Farbmitteln oder anderen Elementen versetzt oder dotiert sein. Als Farbmittel oder andere Elemente eignen sich beispielsweise organische oder anorganische Farbpigmente wie farbige Metalloxide, z.B. Magnetit, Chromoxid oder Farbpigmente wie z.B. Berliner Blau, Ultramarin, Bismutvanadat, Thenards Blau, oder aber organische Farbpigmente wie

z.B. Indigo, Azopigmente, Phthalocyanine oder auch Karminrot oder Elemente wie z.B. Yttrium oder Antimon. Effektpigmente enthaltend diese Schichten zeigen eine hohe Farbenvielfalt in bezug auf ihre Körperfarbe und können in vielen Fällen eine winkelabhängige Änderung der Farbe (Farbflop) durch Interferenz zeigen.

Die äußere Schicht auf dem Träger ist in einer bevorzugten Ausführungsform ein hochbrechendes Metalloxid. Diese äußere Schicht kann zusätzlich auf den oben genannten Schichtpaketen oder bei hochbrechenden Trägern Teil eines Schichtpaketes sein und z.B. aus TiO_2 , Titansuboxiden, Fe_2O_3 , SnO_2 , ZnO , ZrO_2 , Ce_2O_3 , CoO , Co_3O_4 , V_2O_5 , Cr_2O_3 und/oder Mischungen davon, wie zum Beispiel Ilmenit oder Pseudobrookit, bestehen. TiO_2 ist besonders bevorzugt.

Beispiele und Ausführungsformen der oben genannten Materialien und Pigmentaufbauten finden sich z.B. auch in den Research Disclosures RD 471001 und RD 472005, deren Offenbarungen hiermit unter Bezugnahme mit eingeschlossen sind.

Die Dicke der Metalloxid-, Metalloxidhydrat-, Metallsuboxid-, Metall-, Metallfluorid-, Metallnitrid-, Metalloxynitridschichten oder einer Mischung daraus beträgt üblicherweise 3 bis 300 nm und im Falle der Metalloxid-, Metalloxidhydrat-, Metallsuboxid-, Metallfluorid-, Metallnitrid-, Metalloxynitridschichten oder einer Mischung daraus vorzugsweise 20 bis 200 nm. Die Dicke der Metallschichten beträgt vorzugsweise 4 bis 50 nm.

Die Größe der Träger und damit der Effektpigmente ist an sich nicht kritisch. Plättchenförmige Träger und/oder mit einer oder mehreren transparenten oder semitransparenten Metalloxid-, Metall- oder Metallfluoridschichten beschichtete plättchenförmige Träger weisen in der Regel eine Dicke zwischen 0.05 und 5 μm , insbesondere zwischen 0.1 und 4.5 μm auf. Die Ausdehnung in der Länge bzw. Breite beträgt

üblicherweise zwischen 1 und 250 μm , vorzugsweise zwischen 2 und 200 μm und insbesondere zwischen 2 und 100 μm .

- 5 Auf den oben beschriebenen Substraten sind eine oder mehrere Schichten aus ein oder mehreren Polymeren und eine oder mehrere Schichten aus ein oder mehreren Silanen aufgebracht. Vorzugsweise liegen die ein oder mehreren Schichten aus Silanen und Polymeren als alternierende Schichten aus Silanen und Polymeren vor, das heißt, die Schichten aus Silanen und Polymeren wechseln sich ab. Wird auf das Substrat zunächst
- 10 eine Schicht aus ein oder mehreren Silanen aufgebracht, wird vorzugsweise anschließend eine Schicht aus ein oder mehreren Polymeren aufgebracht, und umgekehrt. Dieser wechselseitige Aufbau kann mehrmals hintereinander vorliegen, wobei sowohl eine ungerade als auch eine
- 15 gerade Anzahl an Schichten vorliegen kann, z.B. zwei, drei, vier, fünf, sechs Schichten oder ein Vielfaches hiervon. Die Reihenfolge kann dabei beliebig an die Erfordernisse angepasst werden. Bevorzugt liegt ein Aufbau vor, bei dem das Substrat mit einer Schicht aus einem oder mehreren Polymeren und einer darauf aufgetragenen Schicht eines oder mehrerer Silane beschichtet ist, oder das Substrat mit einer Schicht aus einem oder
- 20 mehreren Silanen und einer darauf aufgetragenen Schicht eines oder mehrerer Polymere beschichtet ist. Insgesamt ist damit vorzugsweise genau eine Schicht eines oder mehrerer Silane und eine Schicht eines oder mehrerer Polymere auf das Substrat aufgebracht.
- 25 Die ein oder mehreren Polymere können ausgewählt sein aus der Gruppe der Polyether, Polyacrylate, Polyvinylcaprolactame, Cellulose, Polystyrole, Polyvinylalkohole, Polyvinylacetate, Polysiloxane, Derivaten der genannten Polymere oder aus Mischungen hieraus. Vorzugsweise handelt es sich bei den Polymeren um LCST- und/oder UCST-Polymere oder um Polymere mit
- 30 solvolysierbaren Gruppen. LCST-Polymere bzw. UCST-Polymere sind Polymere, die bei niedrigen bzw. hohen Temperaturen in einem Lösemittel löslich sind und bei Erhöhung bzw. Erniedrigung der Temperatur und

Erreichen der sogenannten LCST bzw. UCST (lower bzw. upper critical solution temperature) aus der Lösung als gesonderte Phase abgeschieden werden. Derartige Polymere werden z.B. in der Literatur in „Polymere“, H.G. Elias, Hüthig und Wepf-Verlag, Zug, 1996 auf den Seiten 183 ff. beschrieben. Bei den Polymeren mit solvolysierbaren Gruppen werden diese bei der Solvolyse abgespalten, wobei das Polymer auf dem Substrat ausfällt.

Geeignete LCST-Polymere für die vorliegende Erfindung sind beispielsweise solche, wie sie in der WO 01/60926 und WO 03/014229 beschrieben werden. Besonders geeignete LCST-Polymere sind Polyalkylenoxid-Derivate, vorzugsweise Polyethylenoxid (PEO)-Derivatet, Polypropylenoxid (PPO)-Derivate, olefinisch modifizierte PPO-PEO-Block-Copolymere, mit Acrylat-modifizierte PEO-PPO-PEO-Dreiblock-Copolymere, sowie Polymere bzw. deren Derivate aus der Klasse der Polymethylvinylether, Poly-N-vinylcaprolactame, Ethyl-(hydroxyethyl)-cellulosen, Poly-(N-isopropylacrylamid) sowie Polysiloxane. Besonders bevorzugte LCST-Polymere sind mit olefinischen oder silanolischen Gruppen modifizierte Siloxan-Polymere oder Polyether.

Geeignete UCST-Polymere sind insbesondere Polystyrol, Polystyrol-Copolymere und Polyethylenoxid-Copolymere.

Bevorzugt werden LCST- bzw. UCST-Polymere mit solvolysierbaren bzw. funktionellen Gruppen verwendet, die starke Wechselwirkungen und/oder chemische Bindungen mit dem Substrat oder dem Anwendungsmedium, wie z.B. der Lackmatrix, eingehen können. Alle dem Fachmann bekannten funktionellen Gruppen sind geeignet, insbesondere Silanol-, Amino-, Hydroxyl-, Olefin-, Hydroxyl-, Epoxy-, Säureanhydrid- und Säuregruppen.

Die LCST- bzw. UCST-Polymere besitzen vorzugsweise Molmassen im Bereich von 300 bis 500000 g/mol, insbesondere von 500 bis 20000 g/mol.

Die ein oder mehreren Polymerschichten können zusätzlich auch Additive enthalten, die die chemische und/oder mechanische Stabilität der Partikel zusätzlich erhöhen oder erniedrigen bzw. den Partikeln UV-filternde Eigenschaften oder eine farbgebende Wirkung verleihen. Geeignete Additive sind z.B. Nanopartikel aller Art, Weichmacher, Antioxidantien, Radikalfänger, UV-Filter, Farbstoffe, Mikrotitan oder deren Gemische. Die Additive werden der Lösung des Polymeren vorzugsweise als Dispersion zugemischt, wobei bevorzugt dasselbe Lösemittel wie das der Polymerlösung zum Einsatz kommt. Durch den Einschluss von Fremdstoffen, wie z.B. Nanopartikeln, Weichmachern oder Farbstoffen können die Eigenschaften der Partikel den individuellen Bedürfnissen des Anwenders angepasst werden, bzw. es können mehrere Funktionalitäten, wie z.B. Farbgebung und UV-Filter, miteinander in einer Sorte Partikel kombiniert werden.

Ein weiterer wesentlicher Bestandteil der erfindungsgemäßen Partikel sind die ein oder mehreren Schichten eines oder mehrer Silane. Als Silane eignen sich Organosilane der allgemeinen Formel



mit X = OH, Halogen, Alkoxy, Aryloxy

Z = Si

R = Alkyl, Phenyl oder Wasserstoff

B = organische, zumindest bifunktionelle Gruppe (Alkylen, Alkylenoxyalkylen)

Y = Alkyl-, Amino-, substituierte Amino-, Hydroxy-, Hydroxyalkyl-, Siloxan-, Acetoxy, Isocyanat-, Vinyl-, Acryloyl-, Epoxy-, Epoxypropyloxy-, Imidazol- oder Ureidogruppe

n, m = 0,1,2,3 mit $n+m \leq 3$ bestehen.

Die Organosilane bestehen aus einer Ankergruppe ($X_{4-n-m}Z$), die z.B. an die Oberfläche des Substrates binden kann, wenigstens einer hydrophoben Gruppe (R,B) sowie einer oder mehrerer Alkyl- bzw. funktioneller Gruppen (Y). Bevorzugt besteht die Ankergruppe aus Alkoxysilanen, die durch hydrolytische Reaktionsbedingungen in entsprechende Hydroxygruppen überführt werden können. Letztere können im Falle der erfindungsgemäßen Ausführungsform, bei der auf dem Substrat zunächst eine Silanschicht und nachfolgend eine Polymerschicht aufgebracht ist, z.B. an eine kalzinierte Metalloxidoberfläche des Substrates binden und die Verankerung über Sauerstoffbrücken bewirken.

Durch die Wahl geeigneter funktioneller Gruppen kann das Organosilan den Anforderungen angepasst werden. Darüber hinaus können, je nach Beschichtungsreihenfolge, durch Reaktion der funktionellen Gruppen mit entsprechenden Funktionalitäten in den Applikationsmedien zusätzliche Bindungen zwischen Pigment und Medium über das Organosilan erzeugt werden. In einer besonderen Ausführungsform wird die Oberfläche der erfindungsgemäßen Partikel mit einer dem Einsatzmedium angepassten Kombination von organischen Funktionalitäten modifiziert. Hierzu eignet sich auch der Einsatz von Mischungen verschiedener Organosilane. Die Hydrophobie der Partikeloberfläche kann durch Integration von alkyhlhaltigen Kupplungsreagenzien, wie z.B. Alkylsilanen, ebenfalls angepasst werden. Neben den Organosilanen ist auch der Einsatz ihrer Hydrolysate sowie ihrer homogenen und heterogenen Oligomere und/oder Polymere bevorzugt, die ebenfalls alleinig oder in Kombination mit den bereits beschriebenen Silanen eingesetzt werden können. Im besonderen bevorzugt sind Mischungen verschiedener Organosilane, insbesondere mit voneinander unterschiedlichen funktionellen Gruppen Y, deren Einsatz eine besondere Anwendungsbreite gewährleistet.

Beispiele für Organosilane sind Propyltrimethoxysilan, Propyltriethoxysilan, Isobutyltrimethoxysilan, n-Octyltrimethoxysilan, i-Octyltrimethoxysilan, n-

Octyltriethoxysilan, n-Decyltrimethoxysilan, Dodecyltrimethoxysilan, Hexadecyltrimethoxysilan, Vinyltrimethoxysilan, Octadecyltrimethoxysilan vorzugsweise Vinyltrimethoxysilan. Als oligomere, alkoholfreie Organosilanhydrolysate eignen sich unter anderem die unter dem

5

Handelsnamen „Dynasytan[®]“ von der Fa. Sivento vertriebenen Produkte, wie z. B. Dynasytan HS 2926, Dynasytan HS 2909, Dynasytan HS2907, Dynasytan HS 2781, Dynasytan HS 2776, Dynasytan HS 2627. Darüber hinaus eignet sich oligomeres Vinylsilan als auch Aminosilanhydrolysat als organische Beschichtung. Funktionalisierte Organosilane sind

10

beispielsweise 3-Aminopropyltrimethoxysilan, 3-Methacryloxytrimethoxysilan, 3-Glycidyoxypropyltrimethoxysilan, beta-(3,4-Epoxy cyclohexyl)-ethyltrimethoxysilan, gamma-Isocyanatopropyltrimethoxysilan, 1,3-bis(3-glycidoxypropyl)-1,1,3,3-tetramethyldisiloxan, Ureidopropyltriethoxysilan, bevorzugt sind 3-Aminopropyltrimethoxysilan, 3-Methacryloxytrimethoxysilan, 3-Glycidyoxypropyltrimethoxysilan, beta-(3,4-Epoxy cyclohexyl)-ethyltrimethoxysilan, gamma-Isocyanatopropyltrimethoxysilan. Beispiele für polymere Silansysteme sind in WO 98/13426 beschrieben und werden z. B. von der Fa. Sivento unter dem Warenzeichen Hydrosil[®] vertrieben.

15

20

Weiterhin sind Gegenstand der vorliegenden Erfindung Verfahren zur Herstellung der erfindungsgemäßen Partikel, wobei Substrate mit einer oder mehreren Schichten aus einem oder mehreren Polymeren und einer oder mehreren Schichten aus ein oder mehreren Silanen beschichtet werden.

25

30

Vorzugsweise erfolgt die Beschichtung mit einer oder mehreren Schichten eines oder mehrerer Polymere durch Ausfällung in Wasser und/oder organischen Lösemitteln, durch Polykondensationsreaktionen, durch Polyadditionsreaktionen und/oder durch radikalische Polymerisation. Besonders bevorzugt ist die Ausfällung der Polymeren, das heißt der Einsatz von Polymerpräzipitationsverfahren. Namentlich sollen hier als

bevorzugte Polymerpräzipitationsverfahren zur Oberflächenmodifizierung von Partikeln die Lower Critical Solution Temperature, die Upper Critical Solution Temperature und die Solvolyse-Technologie genannt werden. Diese Verfahren haben den Vorteil, dass sie zum einen einfach in der verfahrenstechnischen Anwendung, und zum anderen unempfindlich in bezug auf die Art und Funktionalität der Oberfläche sind. Diese Verfahren zeichnen sich durch die Einfachheit ihrer Anwendung aus, da bereits von vorgefertigten Polymeren ausgegangen wird. Ein Multilayeraufbau mit mehreren alternierenden Silan -und Polymerschichten wird dadurch überhaupt erst praktikabel, was bei Fällungspolymerisationen und Grafting From-Methoden infolge der Komplexität mit jeder neuen Schicht schwieriger wird. Die bei den letztgenannten Verfahren anfallenden Mengen unverbrauchter Monomere, die eine höchst unerwünschte Verunreinigung darstellen, da sie chemisch aktiv sind und zusätzlich physikalische Parameter wie die Härte und Elastizität einer Polymermatrix negativ beeinflussen können, lassen sich ebenfalls reduzieren.

In einer bevorzugten Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens wird das Substrat mit einem LCST- und/oder UCST-Polymeren oder Polymeren mit solvolysierbaren Gruppen bzw. einem Polymerengemisch, gegebenenfalls in Anwesenheit eines Lösemittels, gemischt. Das LCST-Polymer wird bei einer Temperatur unterhalb der LCST gelöst, während das UCST-Polymer bei einer Temperatur oberhalb der UCST gelöst wird. In der Regel beträgt die LCST-Temperatur 0.5 bis 90°C, vorzugsweise 35 bis 80°C, während die UCST-Temperatur bei 5 bis 90°C, insbesondere bei 35 bis 60°C liegt. Danach erfolgt gegebenenfalls die Zugabe von Additiven. Anschließend wird die Temperatur, in der Regel um ca. 5°C, über die LCST erhöht bzw. unterhalb die UCST erniedrigt, wobei das Polymer ausfällt und sich auf der Partikeloberfläche absetzt. Zuletzt findet eine Immobilisierung in Form einer Vernetzung des Polymers auf der Partikeloberfläche statt, wobei das Polymer irreversibel auf der Partikeloberfläche fixiert wird. Die Immobilisierung kann radikalisch, kationisch, anionisch oder durch

Kondensationsreaktionen stattfinden. Vorzugsweise werden die LCST- bzw. UCST-Polymere radikalisch oder durch Kondensationsreaktionen vernetzt.

- 5 Für eine radikalische Vernetzung (Immobilisierung) der abgeschiedenen Schicht in Wasser wird vorzugsweise Kaliumperoxodisulfat oder Ammoniumperoxodisulfat in Konzentrationsbereichen von 1 bis 100 Gew.-%, bezogen auf das zur Belegung verwendete olefinische LCST- bzw. UCST-Polymer, eingesetzt. Die Vernetzung erfolgt in Abhängigkeit von der
- 10 LCST- bzw. UCST-Temperatur des Polymeren bei 0 bis 35°C unter Verwendung eines Katalysators, wie z.B. eines Fe(II)-Salzes, oder bei 40 bis 100°C durch direkten thermischen Zerfall des radikalischen Initiators.

- 15 Die Dicke der Polymerschichten liegt üblicherweise im Bereich von 2 bis 500 nm, vorzugsweise bei 5 bis 300 nm und insbesondere bei 5 bis 200 nm.

- 20 Wird bei dem erfindungsgemäßen Verfahren ein Lösemittel benötigt, so richtet sich die Wahl des Lösemittels nach der Löslichkeit des verwendeten Polymers. Vorzugsweise ist das Lösemittel Wasser oder ein mit Wasser mischbares organisches Lösemittel. Zu den mit Wasser mischbaren Lösemitteln zählen auch solche Lösemittel, die Mischungslücken mit Wasser aufweisen. In diesen Fällen werden die Mengenverhältnisse so gewählt, dass Mischbarkeit vorliegt. Beispiele für geeignete Lösemittel sind
- 25 Mono- und Polyalkohole wie z.B. Methanol, Ethanol, n-Propanol, Isopropanol, Glykol, Glycerin, Propylenglykol, Polyethylenglykol, Polybutylenglykol sowie die Mono- und Diether mit Methanol, Ethanol, Propanol und Butanol der Polyalkylenglykole, darüber hinaus Ether, wie z.B. Tetrahydrofuran, Dioxan, 1,2-Propandiolpropylether, 1,2-Butan-1-
- 30 methylether, Ethylenglykolmonomethylether, Diethylenglykolmonomethylether. Weiterhin eignen sich Ester, wie z.B. Essigsäuremethylester, Monoester von Ethylenglykol oder Propylenglykol

mit Essigsäure, Butyrolacton, aber auch Ketone, wie z.B. Aceton oder Methylethylketon oder Amide, wie z.B. Formamid, Dimethylformamid, Dimethylacetamid, N-Methylpyrrolidon und Hexamethylphosphorsäuretriamid, oder Sulfoxide und Sulfone, wie Dimethylsulfoxid und Sulfolan, und Alkancarbonsäuren wie Ameisensäure oder Essigsäure. Bevorzugte Lösemittel sind Wasser und Alkohole bzw. Glykole.

Weiterer Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist die Verwendung der erfindungsgemäßen Partikel in Lacken, Wasserlacken, Pulverlacken, Farben, Druckfarben, Tonern, Sicherheitselementen, Kunststoffen, Beton, in kosmetischen Formulierungen, in Agrarfolien und Zeltplanen und zur Herstellung von Pigmentpräparationen und Trockenpräparaten.

Im Falle von Kosmetika eignen sich die erfindungsgemäßen Partikel besonders für Produkte und Formulierungen der dekorativen Kosmetik, wie z.B. Nagellacke, farbgebende Puder, Lippenstifte oder Lidschatten, Seifen, Zahnpasten etc. Selbstverständlich können die erfindungsgemäßen Partikel in den Formulierungen auch mit jeder Art von kosmetischen Roh- und Hilfsstoffen kombiniert werden. Dazu gehören u.a. Öle, Fette, Wachse, Filmbildner, Konservierungsmittel und allgemein anwendungstechnische Eigenschaften bestimmende Hilfsstoffe, wie z.B. Verdicker und rheologische Zusatzstoffe wie etwa Bentonite, Hektorite, Siliziumdioxid, Ca-Silikate, Gelatine, hochmolekulare Kohlenhydrate und/oder oberflächenaktive Hilfsmittel, etc. Die erfindungsgemäßen Partikel enthaltenden Formulierungen können dem lipophilen, hydrophilen oder hydrophoben Typ angehören. Bei heterogenen Formulierungen mit diskreten wässrigen und nicht-wässrigen Phasen können die erfindungsgemäßen Partikel in jeweils nur einer der beiden Phasen enthalten oder auch über beide Phasen verteilt sein.

- Die pH-Werte der wässrigen Formulierungen können zwischen 1 und 14, bevorzugt zwischen 2 und 11 und besonders bevorzugt zwischen 5 und 8 liegen. Den Konzentrationen der erfindungsgemäßen Partikel in der Formulierung sind keine Grenzen gesetzt. Sie können – je nach Anwendungsfall – zwischen 0,001 (rinse-off-Produkte, z.B. Duschgele) – 100 % (z.B. Glanzeffekt-Artikel für besondere Anwendungen bei Verwendung von Effektpigmenten als Substrat) liegen. Die erfindungsgemäßen Partikel können weiterhin auch mit kosmetischen Wirkstoffen kombiniert werden. Geeignete Wirkstoffe sind z.B. Insect Repellents, UV A/BC-Schutzfilter (z.B. OMC, B3, MBC), Anti-Ageing-Wirkstoffe, Vitamine und deren Derivate (z.B. Vitamin A, C, E etc.), Selbstbräuner (z.B. DHA, Erythrose u.a.) sowie weitere kosmetische Wirkstoffe wie z.B. Bisabolol, LPO, Ectoin, Emblica, Allantoin, Bioflavanoide und deren Derivate.
- Bei Einsatz der Partikel in Lacken und Farben sind alle dem Fachmann bekannten Anwendungsbereiche möglich, wie z.B. Pulverlacke, Automobillacke, Druckfarben für den Tief-, Offset-, Sieb- oder Flexodruck sowie für Lacke in Außenanwendungen. Für die Herstellung der Druckfarben ist eine Vielzahl von Bindern, insbesondere wasserlösliche Typen, geeignet, z.B. auf der Basis von Acrylaten, Methacrylaten, Polyestern, Polyurethanen, Nitrocellulose, Ethylcellulose, Polyamid, Polyvinylbutyrat, Phenolharzen, Maleinharzen, Stärke oder Polyvinylalkohol. Bei den Lacken kann es sich um wasser- oder lösemittelbasierte Lacke handeln, wobei die Auswahl der Lackbestandteile dem Allgemeinwissen des Fachmanns unterliegt.
- Darüber hinaus können die erfindungsgemäßen Partikel in Folien und Kunststoffen verwendet werden, so z.B. in Agrarfolien, infrarotreflektierende Folien und Scheiben, Geschenkfolien, Kunststoffbehältnissen und Formkörpern für alle dem Fachmann bekannten Anwendungen. Als Kunststoffe eignen sich alle gängigen

Kunststoffe für die Einarbeitung der erfindungsgemäßen Partikel, z.B. Duromere oder thermoplastische Kunststoffe. Die Beschreibung der Anwendungsmöglichkeiten und der einsetzbaren Kunststoffe, Verarbeitungsverfahren und Additive finden sich z.B. in der RD 472005
5 oder in R. Glausch, M. Kieser, R. Maisch, G. Pfaff, J. Weitzel, Perlglanzpigmente, Curt R. Vincentz Verlag, 1996, 83 ff., deren Offenbarungsgehalt hier mit umfasst ist.

10 Es hat sich z.B. als vorteilhaft erwiesen, im Rahmen der vorliegenden Erfindung bei plättchenförmigen Effektpigmenten als Partikel zur Anwendung in Flüssiglacksystemen diese zuerst mit einer Silanschicht, die als Wassersperrschicht fungiert, und danach mit einer Polymerschicht zu belegen, wobei der Polymerschicht die Rolle der Stabilisierung der Partikel, der mechanischen Stabilisierung und der Wechselwirkungsbildung mit
15 der Matrix, bevorzugt einer Bindemittelmatrix zukommt. Ein wichtiges Kriterium zur Beurteilung der erfindungsgemäßen Partikel ist die Veränderung ihrer Eigenschaften bei Einarbeitung in Lacken. Als ein Kriterium zur Untersuchung dient dabei die DOI (Distinctness of image), die die Schärfe der Seitenränder eines an einer Oberfläche eines Objektes reflektierten Abbildung beschreibt. Insbesondere bei Effektpigmenten ist
20 ein möglichst hohes Maß an DOI erwünschenswert, um ein hohes Maß an Reflektivität und Glanz zu erreichen. Die gemäß der vorliegenden Erfindung beschichteten Partikel, z.B. Effektpigmente, besitzen, wenn sie in Lacksysteme eingearbeitet werden, einen hohen Anfangswert für die DOI und bei Belastung mit Wasser, z.B. im Zuge eines Kondenswassertests, einen geringen DOI-Abfall. Flockulation im Lackmedium und Aggregation
25 beim Trockenvorgang werden extrem stark zurückgedrängt und die Benetzung wird durch die äußere Polymerschicht stark verbessert. Allgemein zeigen diese Partikel eine universellere Anwendbarkeit in den
30 unterschiedlichsten Polymermatrixsystemen.

Zur Anwendung in Systemen mit höherer mechanischer Belastung muss die entsprechende Polymerschicht in ihrer Dicke gegenüber der Silanschicht angepasst werden. Oftmals ist, z.B. bei der Anwendung in Pulverlacksystemen, eine gewisse Unverträglichkeit mit der Lackmatrix erwünscht um beispielsweise sogenannte Leafing-Effekte (das Aufschwimmen von Pigmenten an der Oberfläche bei Einarbeitung in einer Bindemittelmatrix) zu erzeugen. Hier kann es von Vorteil sein, die Schichtabfolge in umgekehrter Weise vorzunehmen. Eine entsprechende Schichtabfolge zeigt sich oftmals auch thermisch beständiger, so dass auch thermisch anspruchsvolle Anwendungen dieser Partikel in Kunststoffen möglich werden. Eine dicke Polymerschicht verringert zum Beispiel auch die Separierung bei der Pulverlackapplikation, so dass die erfindungsgemäßen Partikel bevorzugt in Pulverlacken, Flüssiglacksystemen, Kunststoffen und in Systemen mit hohem mechanischen Energieeintrag eingesetzt werden, wobei die Schichtenfolge und Zusammensetzung, sowie die Dicke der einzelnen Schichten speziell den Erfordernissen angepasst werden können.

Die erfindungsgemäßen Partikel mit Multilayeraufbau eignen sich in den oben genannten Anwendungsgebieten ebenso zur Verwendung in Abmischungen mit organischen Farbstoffen und/oder Pigmenten, wie z.B. transparenten und deckenden Weiß-, Bunt- und Schwarzpigmenten sowie mit plättchenförmigen Eisenoxiden, organischen Pigmenten, holographischen Pigmenten, LCPs (Liquid Crystal Polymers) und herkömmlichen transparenten, bunten und schwarzen Glanzpigmenten auf der Basis von metalloxidbeschichteten Plättchen auf Basis von Glimmer, Glas, Al_2O_3 , Fe_2O_3 , SiO_2 , etc. Die erfindungsgemäßen Effektpigmente können in jedem Verhältnis mit handelsüblichen Pigmenten und Füllern gemischt werden.

Als Füllstoffe sind z.B. natürlicher und synthetischer Glimmer, Nylon Powder, reine oder gefüllte Melaninharze, Talcum, Gläser, Kaolin, Oxide

oder Hydroxide von Aluminium, Magnesium, Calcium, Zink, BiOCl, Bariumsulfat, Calciumsulfat, Calciumcarbonat, Magnesiumcarbonat, Kohlenstoff, sowie physikalische oder chemische Kombinationen dieser Stoffe zu nennen. Bezüglich der Partikelform des Füllstoffes gibt es keine
5 Einschränkungen. Sie kann den Anforderungen gemäß z.B. plättchenförmig, sphärisch oder nadelförmig sein.

Die erfindungsgemäßen Partikel sind weiterhin geeignet zur Herstellung von fließfähigen Pigmentpräparationen und Trockenpräparaten enthaltend
10 ein oder mehrere erfindungsgemäße Partikel, Bindemittel und optional ein oder mehrere Additive. Unter Trockenpräparate sind auch Präparate zu verstehen, die 0 bis 8 Gew.-%, vorzugsweise 2 bis 8 Gew.-%, insbesondere 3 bis 6 Gew.-%, an Wasser und/oder eines Lösemittels oder Lösemittelgemisches enthalten. Die Trockenpräparate liegen vorzugsweise
15 als Pellets, Granulate, Chips, Würstchen oder Briketts vor und weisen Teilchengrößen von 0,2-80 mm auf. Die Trockenpräparate finden insbesondere Anwendung bei der Herstellung von Druckfarben und in kosmetischen Formulierungen.

20 Wegen der breiten Anwendbarkeit sind Lacke, Wasserlacke, Pulverlacke, Farben, Druckfarben, Sicherheitselemente, Kunststoffe, Beton, kosmetische Formulierungen, Agrarfolien, Zeltplanen Pigmentpräparationen und Trockenpräparate enthaltend Partikel mit Multilayeraufbau gemäß der vorliegenden Erfindung ebenfalls Gegenstand
25 der vorliegenden Erfindung.

Die nachfolgenden Beispiele sollen die Erfindung näher erläutern, ohne sie jedoch zu begrenzen.

Beispiele:Beispiel 1:

100g Iriodin[®] 225 werden in 600 ml destilliertem Wasser auf 75°C unter
5 Rühren erwärmt. Es werden 1g Aminopropyltrimethoxysilan und danach 1g
Vinyltrimethoxysilan langsam zugetropft. Nach 30 Minuten Rühren bei 75°C
wird abfiltriert, gewaschen. Es wird erneut das Pigment in 300 ml Wasser
aufgenommen, bei 20°C 1.5% eines olefinfunktionalisierten
10 Polypropylenoxids zugetropft, auf 66°C erwärmt und nach der Zugabe von
1g Kaliumperoxodisulfat radikalisch vernetzt, indem 60 Minuten bei dieser
Temperatur nachgerührt wird. Es wird abfiltriert, das nachbeschichtete
Pigment mit Wasser gewaschen und im Umluftofen bei 130°C getrocknet.
Eingearbeitet in konventionelle Lacksysteme und Wasserlacksysteme weist
das Pigment im allgemeinen sowohl einen hohen Anfangswert für die DOI
15 als auch einen geringen DOI-Abfall auf. Wesentlich ist, dass dieses
Pigment universell in verschiedensten Lacksystemen eingesetzt werden
kann, so dass die beschriebenen Vorteile nahezu unabhängig von
Lacksystem auftreten. Verglichen mit silanbeschichteten Effektpigmenten
weist dieses Pigment ferner eine erhöhte mechanische Stabilität
20 gegenüber Scherbelastungen auf.

Beispiel 2:

100g Iriodin[®] 103 werden in 300 ml destilliertem Wasser mit 3g eines
25 amino-funktionalisierten Polypropylenoxids (LCST-Temperatur 40°C) bei
Raumtemperatur gerührt. Es wird auf 45°C erwärmt und 15 Minuten bei
dieser Temperatur gerührt. Nach der weiteren Erwärmung auf 75°C werden
nochmals 300 ml destilliertes Wasser zugegeben. Nach der langsamen
Zugabe von 0.5g Aminopropyltrimethoxysilan werden 1.5g
30 Vinyltrimethoxysilan ebenfalls langsam zugetropft. Nach 45 Minuten

Rühren bei 75°C wird das nachbeschichtete Effektpigment abfiltriert, gewaschen und bei 130°C im Umluftofen getrocknet.

Dieses Pigment eignet sich aufgrund seiner dickeren Polymerschicht für Systeme mit erhöhtem mechanischem Energieeintrag, also auch für
5 Pulverlackanwendungen, da es wegen seiner hydrophoben Oberfläche in vielen Pulverlacksystemen ausgezeichnete Leasing- und geringe Separationseigenschaften bei der Applikation zeigt. Aufgrund der thermisch stabilen Silanbeschichtung als äußerste Schicht kann es auch mit Erfolg in Kunststoffen mit hoher thermischer Belastung eingesetzt werden.

10



15

20



25

30

Patentansprüche

- 5 1. Partikel mit Multilayeraufbau auf der Basis von Substraten, dadurch gekennzeichnet, dass die Substrate mit einer oder mehreren Schichten aus einem oder mehreren Polymeren und einer oder mehreren Schichten aus einem oder mehreren Silanen beschichtet sind.
- 10 2. Partikel nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass es sich um alternierende Schichten aus Polymeren und Silanen handelt.
- 15 3. Partikel nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass die Substrate mit einer Schicht aus einem oder mehreren Polymeren und einer darauf aufgetragenen Schicht eines oder mehrerer Silane beschichtet sind.
- 20 4. Partikel nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass die Substrate mit einer Schicht aus einem oder mehreren Silanen und einer darauf aufgetragenen Schicht eines oder mehrerer Polymere beschichtet sind.
- 25 5. Partikel nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, dass die Substrate plättchenförmig sind.
- 30 6. Partikel nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, dass das Substrat ausgewählt ist aus der Gruppe aus SiO_2 -, TiO_2 -Partikeln, Effektpigmenten, holographischen Pigmenten, Perlglanzpigmenten, Interferenzpigmenten, Mehrschichtpigmenten, Metalleffektpigmenten und/oder BiOCl -Pigmenten.
7. Partikel nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, dass die Effektpigmente, holographischen Pigmente, Perlglanzpigmente,

Interferenzpigmente, Mehrschichtpigmente und/oder Metalleffektpigmente auf natürlichem oder synthetischem Glimmer, Al_2O_3 -, TiO_2 -, SiO_2 -, Fe_2O_3 -, Glas-, Keramik- oder Graphitplättchen basieren.

5

8. Partikel nach einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, dass die ein oder mehreren Polymere ausgewählt sind aus der Gruppe der Polyether, Polyacrylate, Polyvinylcaprolactame, Cellulose, Polystyrole, Polyvinylalkohole, Polyvinylacetate, Polysiloxane, Derivate der genannten Polymere oder aus Mischungen hieraus.

10

9. Partikel nach einem der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, dass es sich bei den Polymeren um LCST- und/oder UCST-Polymere oder Polymere mit solvolysierbaren Gruppen handelt.

15

10. Partikel nach einem der Ansprüche 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, dass die ein oder mehreren Polymerschichten zusätzlich Additive enthalten.

20

11. Partikel nach einem der Ansprüche 1 bis 10, dadurch gekennzeichnet, die ein oder mehreren Silane ausgewählt sind aus der Gruppe der Organosilane mit der allgemeinen Formel



25

mit X = OH, Halogen, Alkoxy, Aryloxy

Z = Si

R = Alkyl, Phenyl oder Wasserstoff

B = organische, zumindest bifunktionelle Gruppe (Alkylen,

30

Alkylenoxyalkylen)

Y = Alkyl-, Amino-, substituierte Amino-, Hydroxy-, Hydroxyalkyl-, Siloxan-, Acetoxy, Isocyanat-, Vinyl-, Acryloyl-, Epoxy-, Epoxypropyloxy-, Imidazol- oder Ureidogruppe
n, m = 0,1,2,3 mit $n+m \leq 3$ bestehen.

5

12. Verfahren zur Herstellung von Partikeln mit Multilayeraufbau gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass Substrate mit einer oder mehreren Schichten aus einem oder mehreren Polymeren und einer oder mehreren Schichten aus ein oder mehreren Silanen beschichtet werden.

10

13. Verfahren gemäß Anspruch 12, dadurch gekennzeichnet, dass die Beschichtung mit ein oder mehreren Polymeren durch Ausfällung in Wasser und/oder organischen Lösemitteln, durch Polykondensationsreaktionen, durch Polyadditionsreaktionen und/oder durch radikalische Polymerisation erfolgt.

15

14. Verfahren gemäß Anspruch 12 oder 13, dadurch gekennzeichnet, dass es sich bei den Polymeren um LCST- und/oder UCST-Polymere oder Polymere mit solvolysierbaren Gruppen handelt.

20

15. Verfahren nach einem der Ansprüche 12 bis 14, dadurch gekennzeichnet, dass die Silane durch Ausfällung in Wasser und/oder organischen Lösemitteln aufgebracht werden.

25

16. Verwendung von Partikeln mit Multilayeraufbau gemäß Anspruch 1 in Lacken, Wasserlacken, Pulverlacken, Farben, Druckfarben, Toner, Sicherheitselementen, Kunststoffen, Beton, in kosmetischen Formulierungen, in Agrarfolien und Zeltplanen und zur Herstellung von Pigmentpräparationen und Trockenpräparaten.

30

17. Lacke, Wasserlacke, Pulverlacke, Farben, Druckfarben, Toner, Sicherheitselemente, Kunststoffe, Beton, kosmetische Formulierungen, Agrarfolien, Zeltplanen Pigmentpräparationen und Trockenpräparate enthaltend Partikel mit Multilayeraufbau gemäß Anspruch 1.

5

10



15

20



25

30

Zusammenfassung

Die vorliegende Erfindung betrifft Partikel mit funktionellem
Multilayeraufbau auf der Basis von Substraten, dadurch gekennzeichnet,
5 dass die Substrate mit einer oder mehreren Schichten aus einem oder
mehreren Polymeren und einer oder mehreren Schichten aus ein oder
mehreren Silanen beschichtet sind, Verfahren zu Ihrer Herstellung sowie
deren Verwendung.

10

15

20

25

30